



**HAL**  
open science

## Modélisation de la précipitation du peroxyde d'uranium en réacteur à lit fluidisé continu agité mécaniquement et à recirculation

M. Bertrand, L-A. Mojica-Rodriguez, S. Planteur, F. Auger, A. Michaut, E. Plasari, H. Muhr

### ► To cite this version:

M. Bertrand, L-A. Mojica-Rodriguez, S. Planteur, F. Auger, A. Michaut, et al.. Modélisation de la précipitation du peroxyde d'uranium en réacteur à lit fluidisé continu agité mécaniquement et à recirculation. STP 2018 - 9ème colloque Science et technologie des poudres, Jul 2018, Compiègne, France. cea-02338739

**HAL Id: cea-02338739**

**<https://cea.hal.science/cea-02338739>**

Submitted on 24 Feb 2020

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

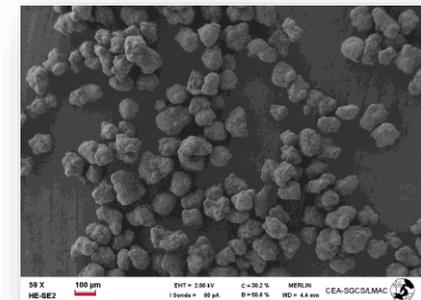
DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE



[www.cea.fr](http://www.cea.fr)

## MODÉLISATION DE LA PRÉCIPITATION DU PEROXYDE D'URANIUM EN RÉACTEUR À LIT FLUIDISÉ CONTINU AGITÉ MÉCANIQUEMENT ET À RECIRCULATION

- M. Bertrand, LA. Mojica-Rodriguez, S. Planteur (CEA Marcoule)
- F. Auger, A. Michaut (OranoMines)
- E. Plasari, H. Muhr (University of Lorraine)



STPMF Juillet 2018

## 1. Contexte de l'étude

Traitement du minerai uranifère

## 2. Comment décrire le fonctionnement du réacteur à lit fluidisé ?

## 3. Validation du modèle proposé

## 4. Conclusion

## 1. Contexte de l'étude

Traitement du minerai uranifère

2. Comment décrire le comportement du réacteur à lit fluidisé ?

3. Validation du modèle

4. Conclusion



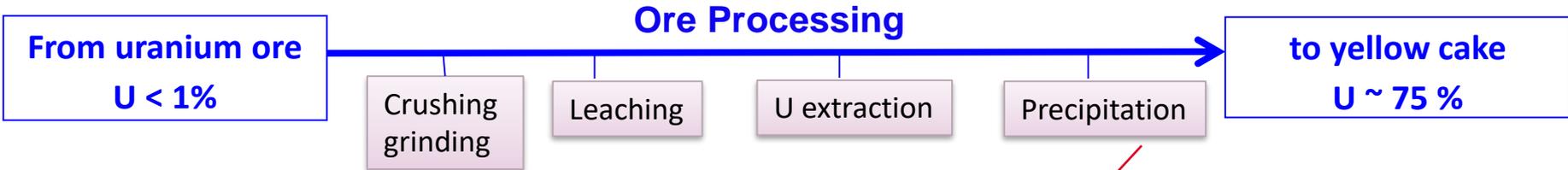
Open-pit mine operation



Key Lake facility  
CANADA

# - 1 - Contexte

# Traitement du minerai uranifère



Étape importante de purification,  
concentration et de mise en forme

⇒ Détermine les propriétés du produit  
final envoyé par bateau vers les  
usines de conversion

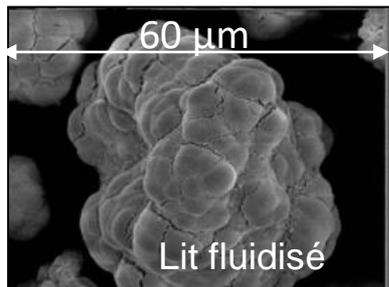
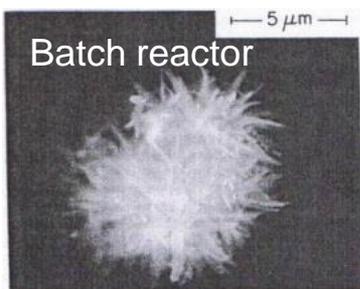


# Précipitation du peroxyde d'uranium en lit fluidisé

- Différent réactifs industriellement utilisés : ammoniac, oxyde de magnésium, hydroxyde de sodium
- **Précipitation de  $UO_2(O_2)$  précipitation en lit fluidisé breveté par orano\***



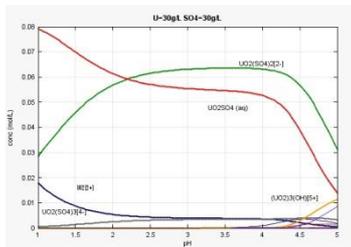
**Studtite**



En termes de :

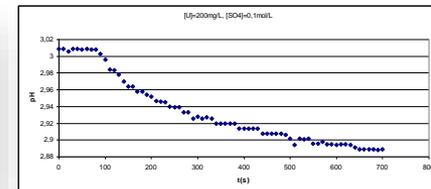
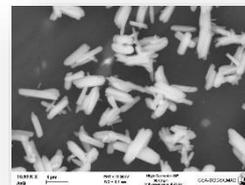
- Pureté : forte sélectivité / U
- Faciès : particules sphériques de taille moyenne élevée ⇒ gestion de la poudre en aval du procédé
- Densité élevée ⇒ Transport vers les usines de conversion

# Modélisation du procédé de précipitation



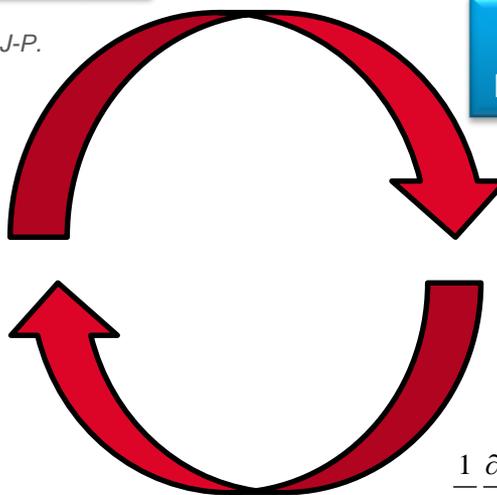
**Thermodynamics**

Planteur, S., Bertrand, M., Plasari, E., Cortaud, B., Gaillard, J-P.  
CrystEngComm, 15, 2305-2313 (2013)



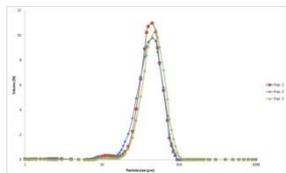
**Mechanisms and Kinetic laws**  
Nucleation, crystal growth and agglomeration

M. Bertrand, L. Mojica, E. Plasari, F. Auger, H. Muhr  
Procedia Chemistry 21 263 – 270 (2016)



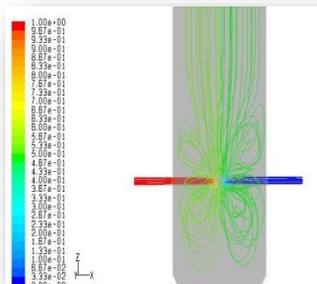
**Modelling :**  
Coupling Chemistry/Turbulence

$$\frac{1}{V} \frac{\partial V\varphi(L,t)}{\partial t} + \frac{\partial G\varphi(L,t)}{\partial L} + \frac{Q_o\varphi(L,t) - Q_i\varphi_i(L,t)}{V} = R_N \delta(L)$$



**Experimental study**  
at pilot scale

L.A. Mojica-Rodriguez, M. Bertrand, J.P. Gaillard, F. Auger, H. Muhr, E. Plasari  
Nuclear Engineering and Design, Vol 293 (2015)



**Technology and**  
mixing phenomena

1. Contexte de l'étude
2. Comment le comportement du réacteur à lit fluidisé ?
3. Validation du modèle
4. Conclusion



**Marcoule facility**

**FRANCE**

**- 2 -**

**Comment décrire le réacteur à lit fluidisé ?**

# FLUIDIZED BED REACTOR

Zone II

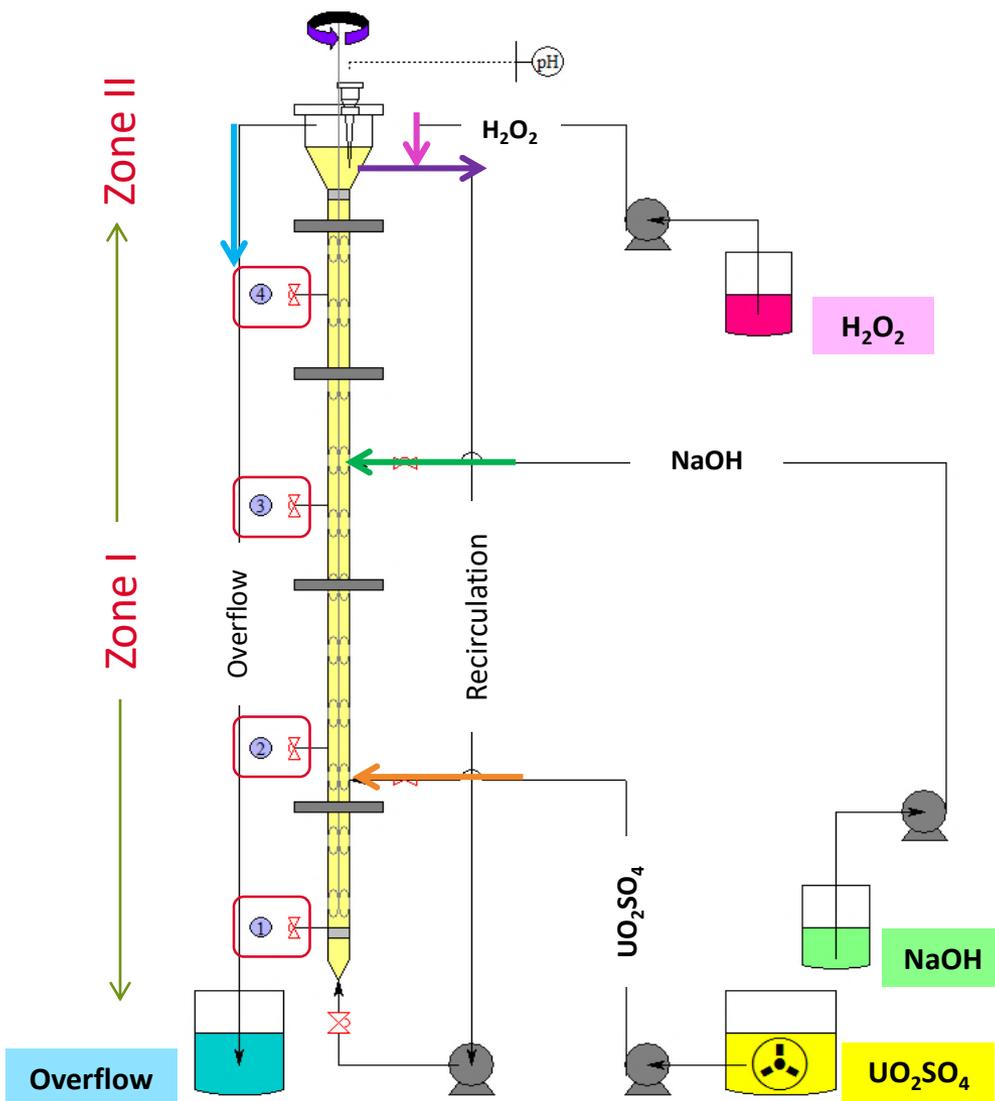


pH probe

Zone I

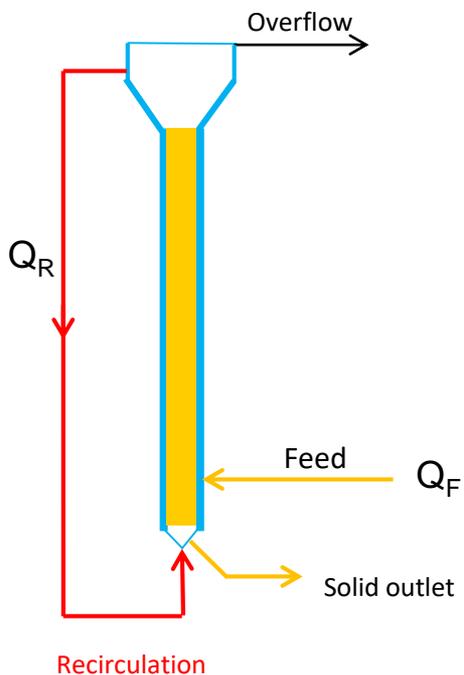


Zone II  
Zone I



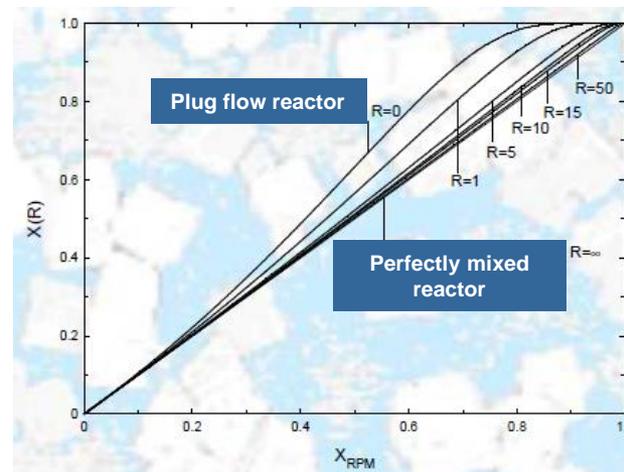
# Analyse de l'hydrodynamique

Critère		Piston	RPA	Réacteur à lit fluidisé
Critère de Peclet	$Pe = \frac{H \cdot u}{D_{ax}}$	$\rightarrow \infty$	$\rightarrow 0$	$\sim 0.1$
Taux de recirculation	$R = \frac{Q_R}{Q_F + Q_R}$	$\rightarrow 0$	$\rightarrow \infty$ Littérature : $> 10^*$	$> 11$



$H$  : hauteur du réacteur (m)  
 $u$  : vitesse du fluide ( $\text{ms}^{-1}$ )  
 $D_{ax}$  : dispersion axiale ( $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ )

Croissance cristalline du peroxyde d'uranium du 1<sup>er</sup> ordre\*\*  
 $G = k_g(S - 1)$



Comparaison entre les taux de conversion du RPA  $X_{RPM}$  et du réacteur piston avec recirculation  $X(R)$



**Comportement hydro qui tend vers celui du RPA**

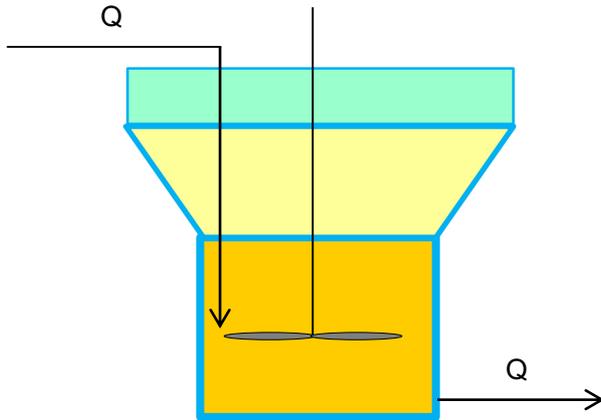
\*J. Villermaux, 1993, Ed. Tec & Doc-Lavoisier

\*\* Planteur, S., Bertrand, M., Plasari, E., Cortaud, B., Gaillard, J-P. CrystEngComm, 15, 2305-2313 (2013)

# Modèle hydrodynamique pour le précipitateur à lit fluidisé

## MSMPR

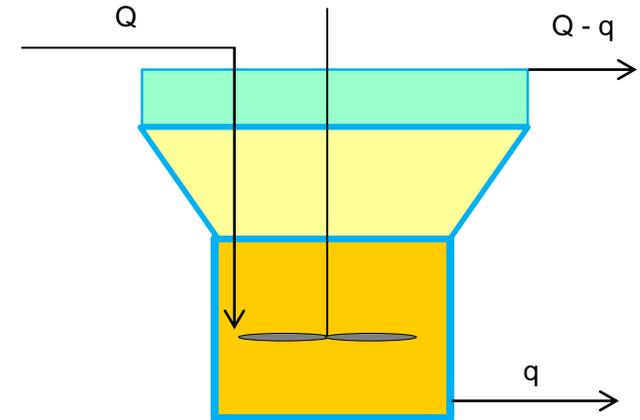
Mixed Suspension Mixed Product Removal



- $Q$  : débit total de suspension entrant et sortant (liquide + solide)

## Précipitateur à Lit fluidisé

Avec agitation mécanique et recirculation élevée



- $q$  : débit total de suspension sortant (liquide + solide)

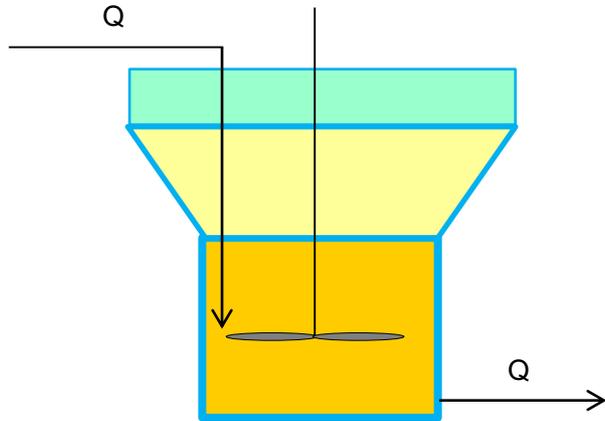


Définition d'un coefficient de séparation phase liquide / suspension

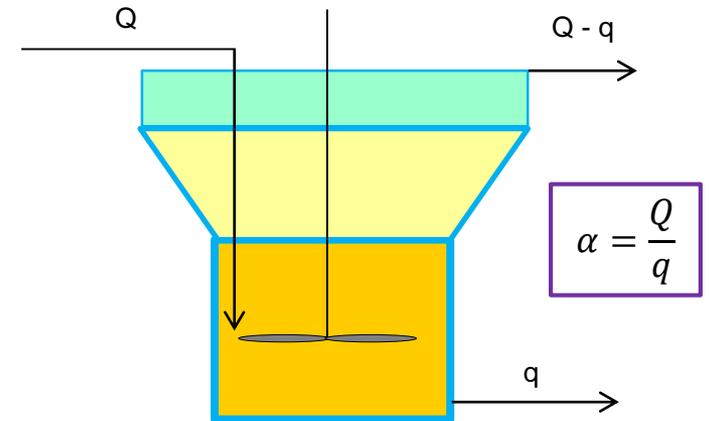
$$\alpha = \frac{Q}{q}$$

# POPULATION BALANCE

## MSMPR Mixed Suspension Mixed Product Removal



## MSSPR Mixed Suspension Separated Product Removal



**Bilan de population**

- En présence of nucléation ( $R_N$ ), croissance cristalline ( $G$ ) et agglomération ( $\beta$ )
- En régime stationnaire –  $\tau$  = temps de séjour
- $G$  indépendante de  $L$  et pas d'ensemencement

$$G \frac{dn(L)}{dL} + \frac{n(L)}{\tau} = r_N \delta(L_c) + B(L) - D(L)$$

Growth rate    outlet    Nucleation rate    Agglomeration rate



$$G \frac{dn(L)}{dL} + \frac{n(L)}{\alpha \tau} = r_N \delta(L_c) + B(L) - D(L)$$

In terms of moments

$$\frac{m_k}{\tau} = r_N L_c + kG m_{k-1} + \bar{B}_k - \bar{D}_k$$



$$\frac{m_k}{\alpha \tau} = r_N L_c + kG m_{k-1} + \bar{B}_k - \bar{D}_k$$

1. Contexte de l'étude

2. Comment décrire le comportement  
du réacteur à lit fluidisé ?

3. Validation du modèle

4. Conclusion



**orano Bessines facility**

# - 3 - Validation du modèle

# CAMPAGNE EN LIT FLUIDISÉ À L'ÉCHELLE PILOTE

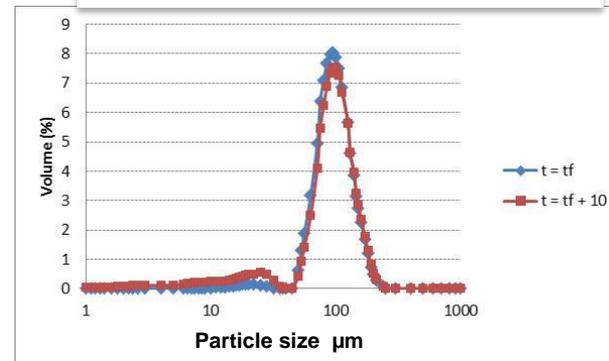


Studtite

Echelle pilote :

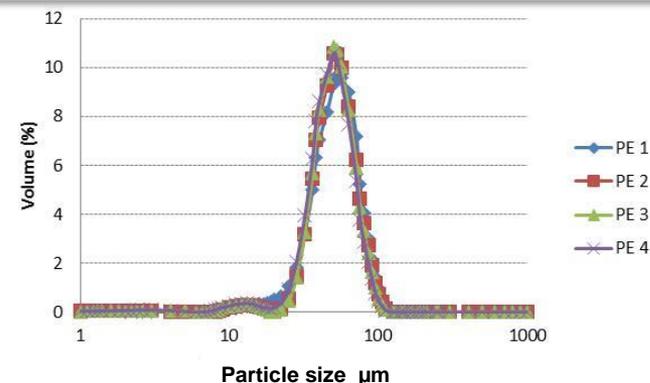
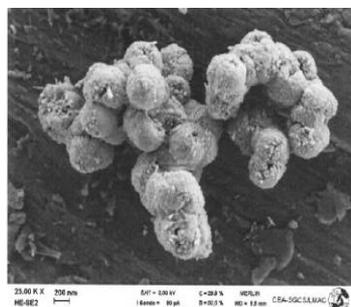
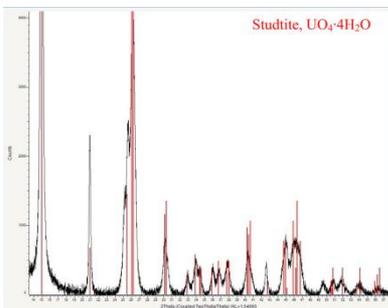
- V ~ 10 L
- ~ 3 semaines
- MEB, DRX, granulométrie, ICP AES
- Rendement U = 99.9%

## 3. Absence de brisure



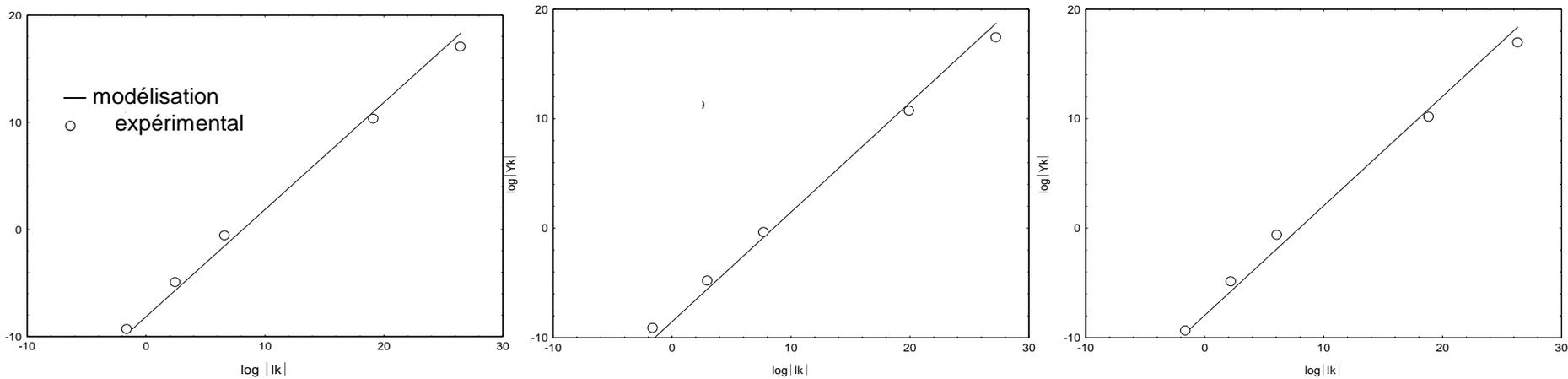
2. distribution de taille étroite et indépendante de la hauteur du réacteur  
→ en accord avec la littérature

## 1. Agglomérats sphériques et compacts



# MSSPR : COMPARAISON MODELE / EXPERIENCES

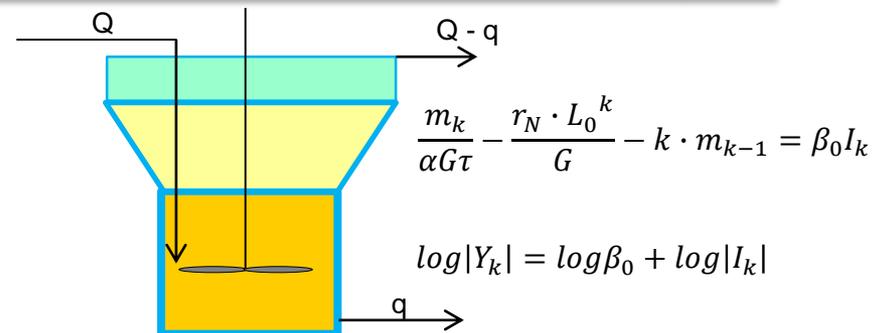
## Comparaison expériences (cercles) et modèle MSSPR (ligne)



Précipitateur à lit fluidisé avec recirculation élevée et agitation mécanique

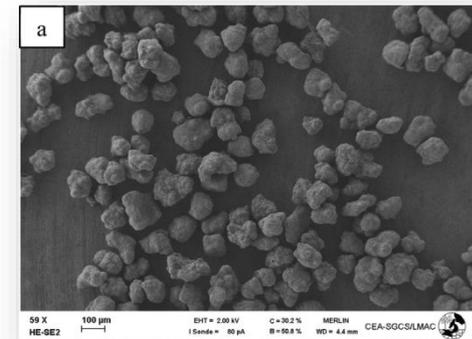


**MSSPR**  
Mixed Suspension Separated Product Removal



## CONCLUSION

- Le modèle MSSPR : adapté à tout type de réaction de précipitation en lit fluidisé agité et avec recirculation  
⇒ bonnes prédictions de l'évolution des tailles cristallines en fonction des paramètres opératoires
- Le réacteur à lit fluidisé robuste ⇒ poudres de bonne qualité
- Loi cinétique de croissance cristalline du peroxyde d'uranium  
⇒ précipitation favorisée significativement par une charge solide élevée

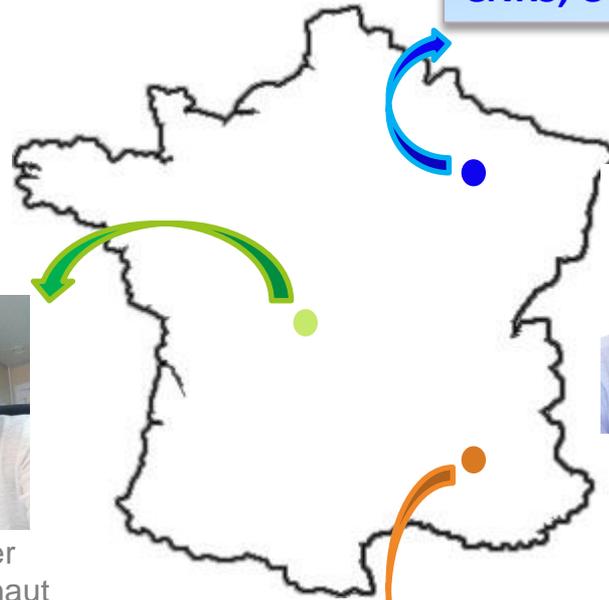


# SCIENTIFIC TEAMS

Reaction and Process Engineering Laboratory  
CNRS, University of Lorraine



Pf H. Muhr  
Pf E. Plasari



AREVA Mines  
Bessines site  
Uranium extraction



F. Auger  
A. Michaut



Dr S. Planteur  
Dr L. Mojica-Rodriguez  
Dr M. Bertrand

**French Atomic Energy Commission**  
**Marcoule facility**  
Nuclear fuel reprocessing and waste processing



**Thank you for  
your attention !**

# HOW TO VALIDATE THE MSSPR MODEL

For uranium peroxide,  $\beta$  was found to be independent of  $L$  and directly linked to  $G$  :

$$\beta = \beta_0 G$$

Equation of the MSSPR

$$\frac{m_k}{\alpha\tau} = r_N L_c + kG m_{k-1} + \overline{B}_k - \overline{D}_k$$



$$\underbrace{\frac{m_k}{\alpha G \tau} - \frac{r_N \cdot L_0^k}{G} - k \cdot m_{k-1}}_{Y_k} = \beta_0 I_k$$

$$Y_k = \beta_0 I_k$$

$$\log|Y_k| = \log\beta_0 + \log|I_k|$$

$$m_k = \int_0^{\infty} L^k n(L) dL$$

$$I_k = \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \left[ \frac{1}{2} (L^3 + \lambda^3)^{k/3} - L^k \right] \cdot n(L) \cdot n(\lambda) dL d\lambda$$

$I_k$  and  $Y_k$  can be estimated from experimental crystal size distributions